

Process for the catalytic conversion of fuel with water and oxygen

Publication number: DE19951585

Publication date: 2001-05-17

Inventor: DOCTER ANDREAS (DE); LOSCHKO BIRGIT (DE); WIESHEU NORBERT (DE)

Applicant: DAIMLER CHRYSLER AG (DE)

Classification:

- **international:** B01J8/00; B01J8/02; B01J19/26; C01B3/38; B01J8/00; B01J8/02; B01J19/26; C01B3/00; (IPC1-7): C01B3/32; B01J8/00; B01J8/02; C01B3/36; C01B3/38; H01M8/06

- **European:** B01J8/00L2; B01J8/02F; B01J19/26; C01B3/38A

Application number: DE19991051585 19991027

Priority number(s): DE19991051585 19991027

Also published as:



EP1095904 (A2)

EP1095904 (A3)

EP1095904 (B1)

BEST AVAILABLE COPY

[Report a data error here](#)

Abstract not available for DE19951585

Abstract of corresponding document: EP1095904

A reactor for the catalytic combustion of hydrocarbon (derivatives) with water and oxygen comprises a catalyst-coated reaction part (1) and an educt feed device for feeding an educt mixture comprising a combustible as the first educt, water as the second educt and an oxygen-containing gas as the third educt. The educt feed device comprises: (i) an outlet on the entrance side of a catalyst-coated reaction part (1) adjacent an educt mixture treatment section (2); (ii) an injection nozzle, in which the combustible comprises liquid droplets and is injected into the educt mixture treatment section; (iii) a gas feed device, in which the oxygen containing gas is fed into the educt mixture; and (iv) a water feed device in which the water is added in spray or vapor form.

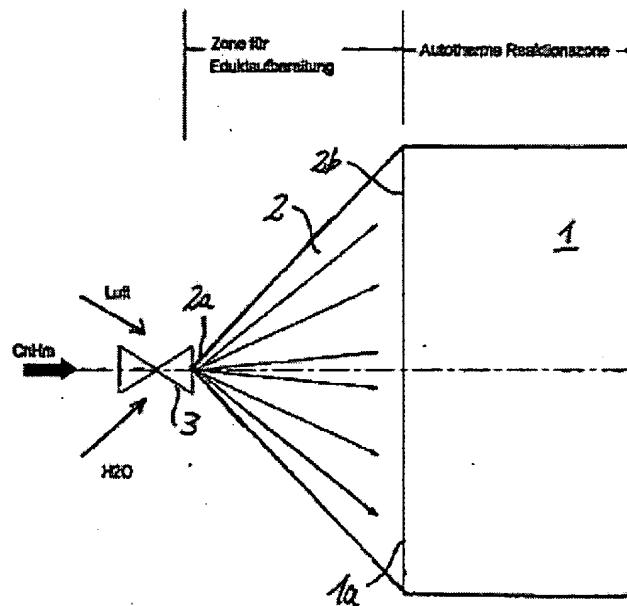


Fig. 1

Data supplied from the **esp@cenet** database - Worldwide



(19) BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENT- UND
MARKENAMT

(12) **Offenlegungsschrift**
(10) **DE 199 51 585 A 1**

(21) Aktenzeichen: 199 51 585.9
(22) Anmeldetag: 27. 10. 1999
(43) Offenlegungstag: 17. 5. 2001

(51) Int. Cl.⁷:
C 01 B 3/32

C 01 B 3/36
C 01 B 3/38
B 01 J 8/00
B 01 J 8/02
H 01 M 8/06

DE 199 51 585 A 1

(71) Anmelder:
DaimlerChrysler AG, 70567 Stuttgart, DE

(72) Erfinder:
Docter, Andreas, Dr.-Ing., 88471 Laupheim, DE;
Loschko, Birgit, Dipl.-Ing., 73730 Esslingen, DE;
Wiesheu, Norbert, Dipl.-Ing., 89312 Günzburg, DE

(56) Entgegenhaltungen:

DE 28 26 025 C2
DE-PS 9 08 513
DE-AS 10 86 216
DE 439 05 284 A1
DE 38 04 453 A1
DE 30 47 734 A1
DE 29 02 845 A1
DE 26 57 385 A1
US 55 49 877 A
US 40 24 912
US 26 55 442

JP 56-100102 A. In Patent Abstracts of Japan
Vol.5 (1981) No.178 (C-78);

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

(34) Reaktoranlage zur katalytischen Brennstoffumsetzung mit Wasser und Sauerstoff

(51) Die Erfindung bezieht sich auf eine Reaktoranlage zur katalytischen Umsetzung eines Kohlenwasserstoff- oder Kohlenwasserstoffderivat-Brennstoffs mit Wasser und Sauerstoff, wobei die Reaktoranlage einen katalysatorbelagten Reaktionsraum und Eduktzufuhrmittel zur Zuführung eines Gemisches aus den drei Edukten in den Reaktionsraum umfaßt.

Erfindungsgemäß beinhalten die Eduktzufuhrmittel einen dem Reaktionsraum vorgeschalteten Eduktgemischaufbereitungsräum, Brennstoffeinspritzmittel zur Eindüsung des Brennstoffs in den Gemischaufbereitungsräum sowie Gaszufuhrmittel zum Einspeisen eines sauerstoffhaltigen Gases unter Verwirbelung der Brennstofftröpfchen und Wasserzufuhrmittel zur Einspeisung von Wasser in zerstäubter oder verdampfter Form.

Verwendung z. B. zur Wasserstofferzeugung aus Benzin oder Methanol in Brennstoffzellenfahrzeugen.

DE 199 51 585 A 1

Beschreibung

Die Erfindung bezieht sich auf eine Reaktoranlage zur katalytischen Umsetzung eines Kohlenwasserstoff- oder Kohlenwasserstoffderivat-Brennstoffs mit Wasser und Sauerstoff nach dem Oberbegriff des Anspruchs 1.

In derartigen Reaktoranlagen werden als Edukte der Brennstoff, das Wasser und ein sauerstoffhaltiges Gas, z. B. Luft, durch entsprechende Eduktzuführmittel einem Reaktionsraum zugeführt, der mit einem geeigneten Katalysatormaterial belegt ist. Unter der Wirkung des Katalysatormaterials wird der eingesetzte Brennstoff mit dem Wasser und dem Sauerstoff umgesetzt. Die Umsetzungsreaktion beinhaltet im allgemeinen einerseits eine endotherme Reformierungsreaktion des Brennstoffs mit dem Wasser und andererseits eine exotherme Oxidationsreaktion des Brennstoffs mit dem Sauerstoff. Durch entsprechende Prozeßführung kann die Umsetzungsreaktion autotherm eingestellt werden, d. h. die exotherme Reaktion des Brennstoff 5 mit dem Sauerstoff liefert gerade die für die endotherme Reformierung des Brennstoffs mit Wasser erforderliche Wärme, so daß weder eine Kühlung, noch eine Beheizung des Reaktionsraums nötig ist. Ziel dieser Art von Umsetzungsreaktionen ist die Gewinnung eines wasserstoffreichen Gases aus dem Brennstoff, z. B. Benzin oder Methanol, um den dadurch erzeugten Wasserstoff z. B. zur Speisung von Brennstoffzellen eines Brennstoffzellenfahrzeugs oder eines stationären Brennstoffzellensystems zu verwenden.

Für die Katalysatorbelegung des Reaktionsraums gibt es verschiedene Möglichkeiten. So kann das Katalysatormaterial als Pelletschüttung oder als Wandbeschichtung vorliegen. Eine weitere Möglichkeit ist das Anbringen des Katalysatormaterials auf einem Katalysatorträger hoher Oberfläche. Zu diesem Zweck kommen als Katalysatorträger verschiedene Strukturen in Betracht, wie Monolithstrukturen aus Metall oder Keramik, Keramiksäume, Drahtgitterscheiben oder Kreuzkanalstrukturen, die als statische Mischer wirken. Für eine effektive Umsetzung des Brennstoffs ist eine möglichst homogene Verteilung der drei Edukte im katalysatorbelegten Reaktionsraum anzustreben. Im Reaktionsraum selbst ist eine homogene Eduktgemischaufbereitung oftmals kaum mehr erreichbar, insbesondere bei monolithischen Katalysatorträgerstrukturen, bei denen im Katalysatorträgerbereich kein Produktgas austausch möglich ist. Je nach Art des Katalysatorträgers wird daher vielfach vorgesehen, die Edukte vor Eintritt in den Reaktionsraum vorzuverdampfen, insbesondere das Wasser und den üblicherweise ebenfalls flüssigen Brennstoff, vorzumischen und als entsprechendes Gas-/Dampfgemisch in den Reaktionsraum einzuleiten.

Der Erfindung liegt als technisches Problem die Bereitstellung einer Reaktoranlage der eingangs genannten Art zugrunde, bei der mit relativ geringem Aufwand sichergestellt ist, daß die drei Edukte in ausreichend gut vermischter Form in den katalysatorbelegten Reaktionsraum gelangen.

Die Erfindung löst dieses Problem durch die Bereitstellung einer Reaktoranlage mit den Merkmalen des Anspruchs 1. Diese Reaktoranlage beinhaltet als Teil der Eduktzuführmittel einen Eduktgemischaufbereitungsraum, der mit seiner Austrittsseite an die Eintrittsseite des katalysatorbelegten Reaktionsraums angrenzt. Die Eduktzuführmittel beinhalten des weiteren Brennstoffeinspritzmittel, mit denen der Brennstoff in flüssiger Form in den Eduktgemischaufbereitungsraum unter Tröpfchenbildung eingespritzt wird, sowie Gaszuführmittel, die so ausgelegt sind, daß sie das sauerstoffhaltige Gas unter Verwirbelung der Brennstofftröpfchen in den Eduktgemischaufbereitungsraum einspeisen, und Wasserzuführmittel, die so ausgelegt

sind, daß mit ihnen das Wasser in zerstäubter oder verdampfter Form in den Eduktgemischaufbereitungsraum gelangt. Die so realisierten Eduktzuführmittel gewährleisten eine ausreichend gute Durchmischung der drei Edukte, d. h. 5 ein ausreichend homogenes Eduktgemisch, schon in dem Eduktgemischaufbereitungsraum, der dem Reaktionsraum vorgeschaltet ist, so daß das Eduktgemisch mit guter, ausreichender Homogenität der Durchmischung der drei Edukte in den Reaktionsraum gelangt.

10 Selbst bei Verwendung von hinsichtlich der Gemischaufbereitung kritischen Katalysatorträgerstrukturen läßt sich somit durch die speziellen Eduktzuführmittel in der erfundungsgemäßen Reaktoranlage der eingesetzte Brennstoff in ausreichend gut mit dem Wasser und dem sauerstoffhaltigen 15 Gas vermischter Form in den Reaktionsraum einbringen und dort z. B. autotherm in ein wasserstoffreiches Gas umsetzen. Die erfundungsgemäße Reaktoranlage läßt sich dabei ohne weiteres so auslegen, daß sie auch die speziellen Bedingungen für einen mobilen Einsatz, z. B. in Brennstoffzellenfahrzeugen, erfüllt, wie ausreichende Dynamik und Temperaturbeständigkeit, ausreichendes Lastspreizungsvermögen, 20 komplette Verdampfung des Brennstoffs und eine von der Einbaulage unabhängige Betriebsfähigkeit, wobei letzteres besonders beim Einbau in Kraftfahrzeuge von Bedeutung 25 ist.

In einer Weiterbildung der Erfindung nach Anspruch 2 beinhalten die Gaszuführmittel speziell Drallströmungszeugsmittel. Die von diesen bewirkte Drallströmung des eingespeisten sauerstoffhaltigen Gases fördert eine gute 30 Verwirbelung der eingespritzten Brennstofftröpfchen im Eduktgemischaufbereitungsraum.

In einer Weiterbildung der Erfindung nach Anspruch 3 beinhalten die Gaszuführmittel speziell Vorerwärmungsmittel, um das sauerstoffhaltige Gas durch Verdichtung und/oder Systemwärmerückkopplung vor oder spätestens im Eduktgemischaufbereitungsraum und damit vor Eintritt in den Reaktionsraum zu erwärmen. Unter Systemwärmerückkopplung ist dabei die Nutzung von Wärme zur Aufheizung des sauerstoffhaltigen Gases zu verstehen, die aus dem System selbst gewonnen wird, z. B. unter Abkühlung des aus dem Reaktionsraum austretenden Produktgases oder einer dem Reaktionsraum nachgeschalteten Systemkomponente, wie einer nachgeschalteten Gasreinigungsstufe zur exothermen Umsetzung und damit Beseitigung von im Produktgas 45 enthaltenem Kohlenmonoxid.

In einer Weiterbildung der Erfindung nach Anspruch 4 sind die Wasserzuführmittel so ausgelegt, daß sie das zerstäubte oder verdampfte Wasser dem sauerstoffhaltigen Gasstrom zudosieren, bevor es mit diesem zusammen in den Eduktgemischaufbereitungsraum eingespeist wird, so daß ein gemeinsamer Zuführkanal zum Einbringen des Wassers und des sauerstoffhaltigen Gasstroms in den Eduktgemischaufbereitungsraum genügt.

In einer Weiterbildung der Erfindung nach Anspruch 5 55 können die Wasserzuführmittel in Abhängigkeit davon unterschiedlich betrieben werden, ob sich die Reaktoranlage in einer Kaltstartphase oder im betriebswarmen Zustand befindet. In ersterem Fall dosieren sie das Wasser in zerstäubter Form zu, während sie in letzterem Fall das Wasser in verdampfter Form zudosieren. Die zum Verdampfen des flüssig berichtigenden Wassers erforderliche Wärme wird hierbei wiederum durch Systemwärmerückkopplung geliefert.

In einer Weiterbildung der Erfindung nach Anspruch 6 60 umfaßt der Eduktgemischaufbereitungsraum einen Hauptraum und eine vorgesetzte Vormischkammer. Die drei Edukte werden in die Vormischkammer eingebracht und dort vorgemischt. Von der Vormischkammer gelangen sie dann in den Hauptraum, z. B. unter Drallerzeugung. Durch

entsprechende Auslegung von Vormischkammer und Hauptraum läßt sich eine sehr intensive Eduktvermischung erreichen, z. B. aufgrund des durch das Vorschalten der Vormischkammer verlängerten Gemischströmungsweges und/oder durch eine Erhöhung der Gemischströmungsgeschwindigkeit, wie sie durch geeignete Gestaltung der Ausströmgeometrie der Vormischkammer, insbesondere einer Querschnittsverjüngung derselben, erzielbar ist.

In einer Weiterbildung der Erfahrung nach Anspruch 7 beinhalten die Eduktzufuhrmittel eine einzelne, vorzugsweise an einer zentralen Stelle der Eintrittseite des Eduktgemischaufbereitungsräums angeordnete Mehrstoffdüse, über die alle drei Edukte in den Eduktgemischaufbereitungsräum eingespeist werden. Je nach Auslegung der Mehrstoffdüse als Zweistoff- oder Dreistoff-Düse werden die drei Edukte dieser Düse getrennt zugeführt, oder es werden zwei Edukte in vorgemischter Form über einen ersten Eintrittskanal und das dritte Edukt über einen zweiten Eintrittskanal der Mehrstoffdüse zugeführt.

In einer Weiterbildung der Erfahrung nach Anspruch 8 beinhalten die Eduktzufuhrmittel mehrere Zufuhrdüsen, die an der Eintrittsseite des Eduktgasaufbereitungsräums verteilt angeordnet sind und von denen jede eines oder mehrere der drei Edukte in dem Eduktgasaufbereitungsräum zudosiert. Insbesondere kann eine flächig verteilte Anordnung einer Vielzahl von Einstoff-Zufuhrdüsen vorgesehen sein, über die jeweils nur eines der drei Edukte in den Eduktgasaufbereitungsräum eingespeist wird. Vorzugsweise sind dabei für jedes der drei Edukte mehrere Zufuhrdüsen vorgesehen, die ihrerseits möglichst gleichmäßig verteilt an der Eintrittsseite des Eduktgasaufbereitungsräums angeordnet sind, so daß insgesamt die Zufuhrdüsen für die verschiedenen Edukte möglichst homogen über die Eintrittsseite des Eduktgasaufbereitungsräums hinweg verteilt sind. Dadurch wird gewährleistet, daß sich die einzeln in den Eduktgasaufbereitungsräum eingebrachten Edukte dort schon in der Nähe der Eintrittsseite und jedenfalls bis zum Erreichen von dessen Austrittseite sehr homogen durchmischen.

Vorteilhafte Ausführungsformen der Erfahrung sind in den Zeichnungen dargestellt und werden nachfolgend beschrieben. Hierbei zeigen:

Fig. 1 eine schematische Prinzipskizze einer Reaktoranlage mit zentraler Eduktzuführung in einen Eduktgemischaufbereitungsräum,

Fig. 2 eine Längsschnittansicht einer gemäß der Prinzipskizze von **Fig. 1** realisierten Reaktoranlage,

Fig. 3 eine Draufsicht auf den Eduktgemischaufbereitungsräum von **Fig. 2** mit mittenversetzter Gasströmungsführung zur Drallerzeugung,

Fig. 4 eine Schnittansicht längs der Linie IV-IV von **Fig. 3**,

Fig. 5 eine Prinzipskizze entsprechend **Fig. 1**, jedoch für eine Reaktoranlage mit Vormischkammer und

Fig. 6 eine Prinzipskizze einer Reaktoranlage mit flächiger Düsenanordnung an der Eintrittseite eines Eduktgemischaufbereitungsräums.

Fig. 1 zeigt schematisch einen hier interessierenden Teil einer Reaktoranlage zur autothermen Umsetzung eines Kohlenwasserstoff-Brennstoffs (in der üblichen allgemeinen Notation C_nH_m angegeben), z. B. Benzin, mit Wasser und Sauerstoff zwecks Gewinnung eines wasserstoffreichen Produktgases, das im allgemeinen zusätzlich Kohlenmonoxid und gegebenenfalls weitere Nebenprodukte enthält. Die Umsetzungsreaktion erfolgt in einer durch einen Reaktionsraum 1 definierten, vorzugsweise autothermen Reaktionszone und umfaßt üblicherweise zum einen eine endotherme Wasserdampfreformierung und zum anderen eine exotherme partielle Oxidation des Brennstoffs. Durch ent-

sprechende Prozeßführung, insbesondere hinsichtlich Temperatur und Druck im Reaktionsraum 1 und der zugeführten Menge des jeweiligen Eduktes, speziell des Mengenverhältnisses von Wasser und Sauerstoff, läßt sich die Umsetzungsreaktion autotherm einstellen, was den Vorteil hat, daß der Reaktionsraum 1 weder gekühlt, noch beheizt werden muß. In den Reaktionsraum 1 ist in herkömmlicher Weise ein zur Katalyse der Umsetzungsreaktion geeignetes Katalysatormaterial eingebracht, z. B. in Form eines mit dem Katalysatormaterial verschenen Katalysatorträgers. Mögliche Katalysatorträgerstrukturen sind monolithische Strukturen aus Metall oder Keramik, Keramikschläume, Drahtgitterscheiben, als statische Mischer wirkende Kreuzkanalstrukturen und dergleichen. Zur homogenen Vermischung der in den Reaktionsraum 1 einzubringenden Edukte, d. h. des eingesetzten Brennstoffs C_nH_m, des Wassers (H₂O) und des Sauerstoffs, sind Eduktzufuhrmittel vorgesehen, die eine direkt an die Eintrittseite 1a des Reaktionsraums 1 angrenzende Eduktaufbereitungszone beinhalten, die durch einen entsprechenden Eduktgemischaufbereitungsräum 2 realisiert ist. An der Eintrittseite 2a des Eduktgemischaufbereitungsräums 2, der mit seiner Austrittsseite 2b in die Eintrittsseite 1a des Reaktionsraums 1 übergeht, sind geeignete Eduktzudosiermittel angeordnet, die den Brennstoff C_nH_m, das Wasser und den Sauerstoff, letzteren z. B. in Form von Luft, mit guter Durchmischung in den Gemischaufbereitungsräum 2 einbringen, wobei zur Durchmischung der drei Edukte auch die Geometrie des Gemischaufbereitungsräums 2 beitragen kann. Im Beispiel von **Fig. 1** erfolgt die Zudosierung der drei Edukte in den Eduktgemischaufbereitungsräum 2 durch eine einzige, zentrale Mehrstoffdüse 3.

Dabei erfolgt die Zudosierung des Brennstoffs unabhängig von den Betriebsbedingungen der Reaktoranlage stets in flüssiger Form, und zwar derart, daß er eine hohe spezifische Oberfläche erhält. Dazu kann die Zufuhrdüse 3 beispielsweise ein elektromagnetisch betätigbares Einspritzventil beinhalten, wie es typischerweise in Verbrennungsmotoren eingesetzt wird. Dieser Einspritzventileteil der Zufuhrdüse 3 kann, wie ebenfalls von herkömmlichen Verbrennungsmotor-Einspritzanlagen bekannt, entweder über ein Niederdrucksystem mit typischen Drücken bis zu etwa 5 bar oder über ein Hochdrucksystem mit typischen Drücken zwischen etwa 20 bar und etwa 120 bar versorgt werden. Je höher das Druckgefälle über dem Einspritzventil ist, um so feiner läßt sich der Brennstoff zerstäuben und um so größer ist folglich seine spezifische Oberfläche in der zerstäubten, im Gemischaufbereitungsräum 2 vorliegenden Form.

Die Luftzudosierung erfolgt so, daß die durch das Einspritzen des Brennstoffs gebildeten Brennstofftröpfchen maximal verwirbelt werden, um eine möglichst gute Vermischung der Verbrennungsluft mit dem Brennstoff zu erreichen. Dies kann insbesondere durch eine Luftströmungsführung erreicht werden, die einen möglichst großen Drall erzeugt. Des weiteren ist eine Luftvorwärmung günstig, die sich durch Verdichtung der angesaugten Luft und/oder durch Systemwärmerrückführung erzielen läßt. Typischerweise wird die Luft hierbei auf ca. 200°C erwärmt. Die Luftverdichtung dient primär dazu, die Luft über die Zufuhrdüse 3 strahlförmig in den Gemischaufbereitungsräum 2 einzubringen und insgesamt das dort aufbereitete Eduktgemisch mit ausreichendem Überdruck in den Reaktionsraum 1 einzuspeisen. Die erwähnte Systemwärmerrückführung besteht darin, dem aus dem Reaktionsraum 1 austretenden Produktgas oder einer dem Reaktionsraum 1 nachgeschalteten Systemkomponente, wie einer Gasreinigungsstufe, überschüssige Wärme zu entziehen und diese zu den Eduktzufuhrmitteln zurückzuführen und dort zu nutzen, z. B. für die erwähnte Luftvorwärmung.

Die Wasserzudosierung zum Gemischaufbereitungsraum 2 erfolgt vorzugsweise in Abhängigkeit davon, ob sich die Reaktoranlage in einer Kaltstartphase oder im betriebswarmen Zustand befindet. Während der Kaltstartphase erfolgt die Wasserzudosierung dadurch, daß flüssiges Wasser fein zerstäubt in den Luftstrom injiziert wird. Die Wasserzerstäubung kann mittels einer herkömmlichen, zu diesem Zweck gebräuchlichen Düse erfolgen, wie einer Vernebelungsdüse oder einem Einspritzventil, die der Zufuhrdüse 3 vorgelagert ist und das zerstäubte Wasser dem Luftstrom vor Eintritt in die Zufuhrdüse 3 beimischt. Diese Beimischung kann auch in einer Zweistoffdüse erfolgen, welcher einerseits der Luftstrom und andererseits das flüssige Wasser zugeführt wird. Als weitere Alternative kommt die Zerstäubung des flüssigen Wassers erst durch die Zufuhrdüse 3 selbst in Betracht, wozu diese dann geeignet ausgelegt ist. Dabei kann das flüssige Wasser bei Bedarf auch dem flüssigen Brennstoff vor Eintritt in die Zufuhrdüse 3 beigemengt und zusammen mit diesem zerstäubt werden.

Im betriebswarmen Zustand der Reaktoranlage steht durch die erwähnte Systemwärmerückkopplung ausreichend Wärme zur Verfügung, so daß auf Wunsch statt der während der Kaltstartphase durchgeführten Zerstäubung eine Verdampfung des flüssig zugeführten Wassers mit rückgekoppelter Systemwärme möglich ist, ohne daß hierfür eine externe Wärmezufuhr zwingend erforderlich ist. Das verdampfte Wasser kann dann separat oder mit dem Luftstrom vorgemischt in den Gemischaufbereitungsraum 2 eingespeist werden. Der Wasserdampf gelangt dann mit einer Temperatur von z. B. ca. 300°C in den Reaktionsraum 1.

In den Fig. 2 bis 4 ist eine praktische Umsetzung für den in Fig. 1 nur skizzenhaft veranschaulichten Anlagenteil gezeigt. Wie daraus ersichtlich, befindet sich der katalysatorbelegte Reaktionsraum 1 in einem zylindrischen Gehäuse 4, an dessen eintrittsseitige Stirnseite ein grob halbkugelförmiger Gehäuseteil 6 angeflanscht ist, dessen Innenfläche 6a eine spezielle, vorgegebene geometrische Formung aufweist, welche die Verwirbelungswirkung der vorgeschalteten Zufuhrdüse unterstützt. Die Zufuhrdüse 3 beinhaltet zum einen ein herkömmliches Einspritzventil 3a, über das der Brennstoff an einer Austrittsdüse 3b in den Eduktgemischaufbereitungsraum 2 mit breitem, kegelförmigem Strahl eingespritzt und dadurch fein zerstäubt wird.

Über einem seitlichen Zuströmkanal 7 der Zufuhrdüse 3 wird ein vorgemischter Luft-/Wasserstrom 8 in den Gemischaufbereitungsraum 2 eingespeist. Dabei wird das Wasser vor dem Zuströmkanaleintritt 7a der Zufuhrdüse 3 in den zugeführten Luftstrom, wie oben erläutert, dampfförmig oder zerstäubt zugegeben. Der Zuströmkanal 7 geht austroßseitig in Drallströmungskanäle 9 über, die in einem anschließenden Teil der Innenseite des den Gemischbildungsräum 2 definierenden Gehäuseteils 6 vorgesehen sind. Wie insbesondere aus Fig. 3 ersichtlich, sind acht derartige Drallströmungskanäle 9 um den Umfang der Eintrittseite des Gemischbildungsräums 2 verteilt mit einem außermittigen Verlauf angeordnet. Die außermittigen Drallströmungskanäle 9 bewirken eine aus der Mitte versetzte Strömungsführung für den zugeführten, das beigemischte dampfförmige bzw. zerstäubte Wasser enthaltenden Luftstrom mit hoher Drallwirkung. Dies bewirkt eine starke Verwirbelung der mit mittigem Einspritzkegel eingedüsten Brennstofftröpfchen durch den Drall-Luftstrom in Eduktgemischaufbereitungsraum 2. Insgesamt wird auf diese Weise eine sehr homogene und fein verteilte Durchmischung der drei Edukte im Gemischaufbereitungsraum 2 erzielt.

Fig. 5 zeigt ein weiteres Ausführungsbeispiel hinsichtlich der Eduktzufuhrmittel, wobei im übrigen für funktionell gleiche Elemente dieselben Bezugszeichen wie im Ausfüh-

rungsbeispiel der Fig. 1 bis 4 verwendet sind. In diesem Beispiel besteht der Eduktgemischaufbereitungsraum aus einem Hauptraum 10 und einer diesem vorgesetzten Vormischkammer 11. Derartige Vormischkammeranordnungen sind beispielsweise von Kraftfahrzeug-Dieselmotoren bekannt. Die Eduktgemischaufbereitung erfolgt primär in der Vormischkammer 11, von der das voraufbereitete Eduktgemisch über einen Verbindungskanal 12 in den Hauptraum 10 eingespeist wird. Der Hauptraum 10 schließt wiederum mit seiner Austrittseite 10a direkt an die Eintrittseite 1a des Reaktionsraums 1 an und ist im übrigen so gestaltet, daß er eine starke Verwirbelung des von der Vormischkammer 11 kommenden, seitlich eintretenden, vorgemischten Eduktstroms 13 bewirkt, wie durch eine Wirbellinie 14 symbolisiert. Zusätzlich trägt zu einer besonders intensiven Vermischung der drei Edukte durch die vorgesetzte Vormischkammer 11 verlängerte Strömungsweg für das Eduktgemisch und eine erhöhte Strömungsgeschwindigkeit des Eduktgemisches bei, die mit einer speziellen Ausströmgeometrie der Vormischkammer 11 bewirkt wird und insbesondere eine entsprechende Querschnittsverjüngung beinhaltet.

Während in den oben beschriebenen Ausführungsbeispielen eine zentrale Eduktgemischeinspeisung durch nur eine Zufuhrdüse vorgesehen ist, zeigt Fig. 6 schematisch ein Ausführungsbeispiel mit flächiger Zudosierung, wobei wiederum für funktionell gleiche Elemente dieselben Bezugszeichen gewählt sind wie in den oben beschriebenen Ausführungsbeispielen. Im Beispiel von Fig. 6 weist der Eduktgemischaufbereitungsraum 2, der austroßseitig wiederum an die Eintrittsstelle des Reaktionsraums 1 angrenzt, eine Eintrittsstelle 2a auf, über die hinweg eine Vielzahl von nebeneinanderliegenden Zufuhrdüsen 15 gleichmäßig verteilt als zweidimensionales Düsenfeld angeordnet ist. Die Zufuhrdüsen 15 sind als Einstoff-Düsen ausgebildet, die jeweils das ihr zugeführte Edukt in den Gemischaufbereitungsraum 2 eindüsen. Dazu ist einem ersten Drittel 15a der Zufuhrdüsen 15 das einzuspeisende Wasser, einem zweiten Drittel 15b die einzuspeisende Luft und einem dritten Drittel 15c der einzuspritzende Brennstoff zugeführt. Die Verteilung der Zufuhrdüsen 15 auf die drei Edukte ist möglichst gleichmäßig gewählt, so daß längs einer beliebigen Richtung der Eintrittsstelle 2c die Zufuhrdüsen für Wasser, Luft und Brennstoff zyklisch aufeinanderfolgen bzw. eine Düse, die das eine Edukt führt, nur von Düsen umgeben ist, welche die beiden anderen Edukte führen.

Alternativ zu dieser Verwendung von Einstoff-Düsen können die Zufuhrdüsen 15 auch von Zweistoff- oder Dreistoff-Düsen gebildet sein, wobei selbstverständlich auch die Verwendung sowohl von Einstoff-Düsen als auch von Zweistoff-Düsen vorgesehen sein kann. Soweit Dreistoff-Düsen verwendet werden, werden diesen alle drei Edukte zugeführt und gemeinsam von der betreffenden Dreistoff-Düse in gut vermischter Form in den Gemischaufbereitungsraum 2 injiziert. Gegebenenfalls verwendeten Zweistoff-Düsen werden zwei der drei Edukte zur gemeinsamen Einspeisung in den Gemischaufbereitungsraum 2 zugeführt, während das dritte Edukt allein oder zusammen mit weiteren Anteilen des ersten und/oder des zweiten Eduktes über andere der Zufuhrdüsen 15 eingedüst wird. Es versteht sich, daß im Vergleich zur Verwendung einer zentralen Zufuhrdüse der Massenstrom bei der flächigen Dosieranordnung von Fig. 6 pro Edukt proportional zur Anzahl der von ihm gespeisten Zufuhrdüsen reduziert ist. Als Zufuhrdüsen 15 sind insbesondere Lochblenden, die von hinten segmentiert das jeweilige Edukt durchlassen, oder Mikrodüsen verwendbar, die nicht nur als Einstoffdüsen, sondern auch als Zweistoff- oder Dreistoff-Düsen ausgebildet sein können. Unter der Annahme einer vollständigen Verdampfung bzw. Vermischung

der Edukte genügt bei der flächigen Zudosierung im Vergleich zur zentralen Zudosierung über eine einzelne Zufuhrdüse mit konzentrischem Sprühkegel bei gegebener, gewünschter spezifischer Brennstoffoberfläche ein verringertes Volumen des Gemischaufbereitungsräums 2, das nur etwa ein Drittel desjenigen bei zentraler Zudosierung betragen braucht. Durch die flächige Zudosierung wird eine homogen durchmischte Tröpfchenströmung generiert, die sich von der flächigen Eintrittsseite 2c bis zur an den Reaktionsraum 1 angrenzenden Austrittsseite des Eduktgemischaufbereitungsräums 2 ausbildet.

In allen gezeigten und oben beschriebenen Ausführungsbeispielen werden vorzugsweise steuerbare Zufuhrdüsen verwendet, die z. B. proportional angesteuert werden können oder von denen bei Verwendung einer flächigen Zudosierung über mehrere Zufuhrdüsen ein Teil der Düsen abgeschaltet werden kann, um eine gewünschte Lastspreizung zu ermöglichen. Für die Zudosiersteuerung der Zufuhrdüsen kann je nach Anwendungsfall eine kontinuierliche oder diskontinuierliche Zudosierung vorgesehen sein. Die kontinuierliche Zudosierung kann z. B. eine Druckregelung oder eine Proportionalsteuerung zugehöriger, regelbarer Zudosieröffnungen beinhalten. Eine diskontinuierliche Zudosierung läßt sich zur zeitlichen Taktung steuerbarer Zodosieröffnungen mit veränderlicher Taktfrequenz und bei Bedarf mit zusätzlicher Druckregelung realisieren.

Es versteht sich, daß sich als Brennstoff vorliegend nicht nur Benzin, sondern auch andere Kohlenwasserstoffe oder Kohlenwasserstoffderivate eignen, die durch Reformierung und Oxidation in ein wasserstoffreiches Gas umgewandelt werden können, z. B. Methanol. Die erfundsgemäße Reaktoranlage läßt sich sehr gut zur Bereitstellung von Wasserstoff für die Brennstoffzellen eines Brennstoffzellenfahrzeugs verwenden, da sie die spezifischen Bedingungen für eine solche mobile Anwendung gut erfüllt, wie ausreichende Lastspreizung und Dynamik, Temperaturbeständigkeit und lageunabhängige Funktionsfähigkeit. Letzteres erleichtert den Einbau im Kraftfahrzeug mit seinen meist begengten Bauraumverhältnissen.

Mit Hilfe des vorgeschalteten Eduktgemischaufbereitungsräums wird gewährleistet, daß die umzusetzenden Edukte sehr homogen vermischt in den Reaktionsraum gelangen. Systemwärme kann rückgekoppelt werden, ohne verloren zu gehen. Vorerwärmte Luft und/oder verdampftes Wasser ermöglichen schon im Eduktgemischaufbereitungsräum eine weitestgehend vollständige Vorverdampfung des eingespritzten Brennstoffs. Da das Eduktgemisch schon homogen in den Reaktionsraum eintritt, kann dort problemlos eine Katalysatorträgerstruktur eingesetzt werden, die nicht mehr wesentlich vermischt wirkt, wie z. B. eine monolithische Kanalstruktur. Es versteht sich, daß sich die erfundsgemäße Reaktoranlage nicht nur für mobile, sondern auch für stationäre Systeme überall dort eignet, wo aus einem Kohlenwasserstoff oder Kohlenwasserstoffderivat ein wasserstoffreiches Gas gewonnen werden soll. Je nach Wunsch braucht die Prozeßführung nicht zwingend autotherm sein, sondern kann auch insgesamt endotherm oder exotherm eingestellt werden.

Patentansprüche

60

1. Reaktoranlage zur katalytischen Umsetzung eines Kohlenwasserstoff- oder Kohlenwasserstoffderivat-Brennstoffs mit Wasser und Sauerstoff, mit
 - einem katalysatorbelegten Reaktionsraum (1) und
 - Eduktzufuhrmitteln zur Zuführung eines Eduktgemisches mit dem Brennstoff als einem er-

sten Edukt, dem Wasser als einem zweiten Edukt und einem sauerstoffhaltigen Gas als einem dritten Edukt in den Reaktionsraum, dadurch gekennzeichnet, daß die Eduktzufuhrmittel folgende Elemente beinhalten:

- einen austauschseitig an die Eintrittsseite (1a) des Reaktionsraums (1) angrenzenden Eduktgemischaufbereitungsräum (2),
- Brennstoffeinspritzmittel, die den Brennstoff in flüssiger Form tröpfchenbildend in den Eduktgemischaufbereitungsräum einspritzen,
- Gaszufuhrmittel, die das sauerstoffhaltige Gas unter Verwirbelung der Brennstofftröpfchen in den Eduktgemischaufbereitungsräum einspeisen, und
- Wasserzufuhrmittel, die das Wasser in zerstäubter oder verdampfter Form in den Eduktgemischaufbereitungsräum einspeisen.

2. Reaktoranlage nach Anspruch 1, weiter dadurch gekennzeichnet, daß die Gaszufuhrmittel Drallströmungserzeugungsmittel beinhalten.
3. Reaktoranlage nach Anspruch 1 oder 2, weiter dadurch gekennzeichnet, daß die Gaszufuhrmittel Mittel zur Vorerwärmung des sauerstoffhaltigen Gases durch Verdichtung und/oder durch Systemwärmerückkopplung beinhalten.
4. Reaktoranlage nach einem der Ansprüche 1 bis 3, weiter dadurch gekennzeichnet, daß die Wasserzufuhrmittel das zerstäubte oder verdampfte Wasser dem sauerstoffhaltigen Gasstrom vor Eintritt desselben in den Eduktgemischaufbereitungsräum zudosieren.
5. Reaktoranlage nach einem der Ansprüche 1 bis 4, weiter dadurch gekennzeichnet, daß die Wasserzufuhrmittel so ausgelegt sind, daß sie während Kaltstartphasen der Reaktoranlage das Wasser in zerstäubter Form in den Eduktgemischaufbereitungsräum einspeisen und im betriebswarmen Zustand der Reaktoranlage das Wasser durch Systemwärmerückkopplung verdampfen und in verdampfter Form in den Eduktgasauflbereitungsräum einspeisen.
6. Reaktoranlage nach einem der Ansprüche 1 bis 5, weiter dadurch gekennzeichnet, daß der Eduktgemischaufbereitungsräum einen Hauptaum (10) und eine diesem vorgesetzte Vormischkammer (11) umfaßt, in welche die drei Edukte zudosiert werden.
7. Reaktoranlage nach einem der Ansprüche 1 bis 6, weiter dadurch gekennzeichnet, daß die Brennstoffeinspritzmittel, die Gaszufuhrmittel und die Wasserzufuhrmittel eine gemeinsame, einzelne Mehrstoffdüse (3) beinhalten, der die drei Edukte getrennt oder zwei der Edukte vormischt und das dritte Edukt davon getrennt zugeführt werden.
8. Reaktoranlage nach einem der Ansprüche 1 bis 7, weiter dadurch gekennzeichnet, daß die Brennstoffeinspritzmittel, die Gaszufuhrmittel und die Wasserzufuhrmittel gemeinsam mehrere, an einer Eintrittsseite (2c) des Eduktgasauflbereitungsräums (2) verteilt angeordnete Zufuhrdüsen (15) beinhalten, von denen jede eines oder mehrere der drei Edukte in den Eduktgasauflbereitungsräum zudosiert.

Hierzu 5 Seite(n) Zeichnungen

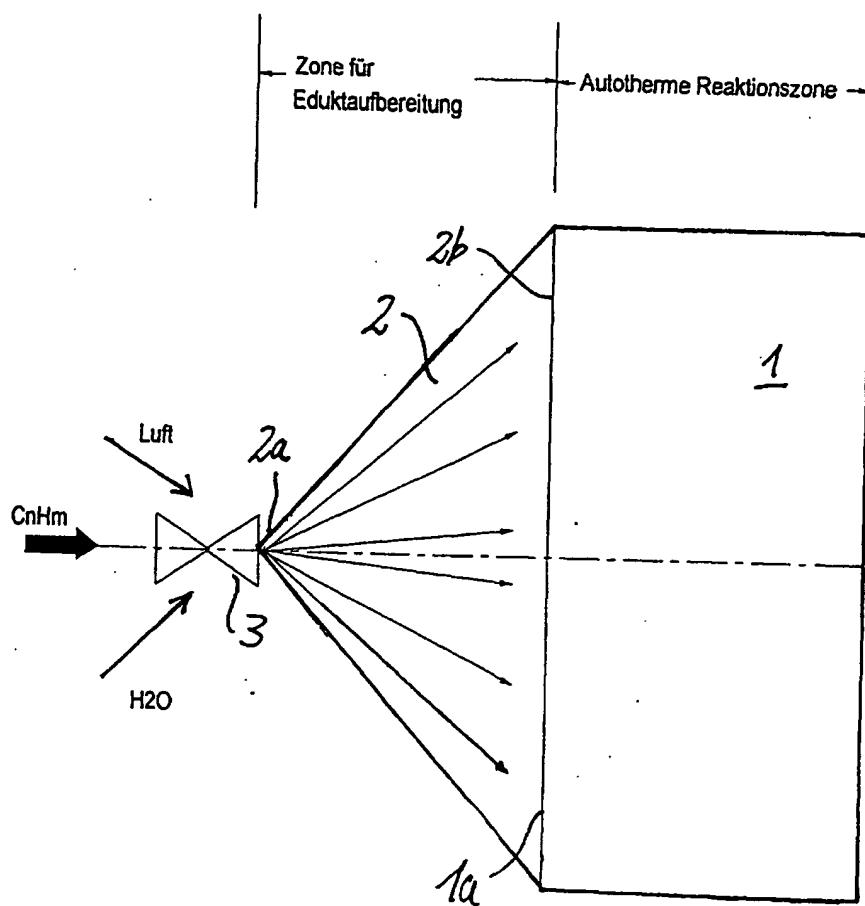
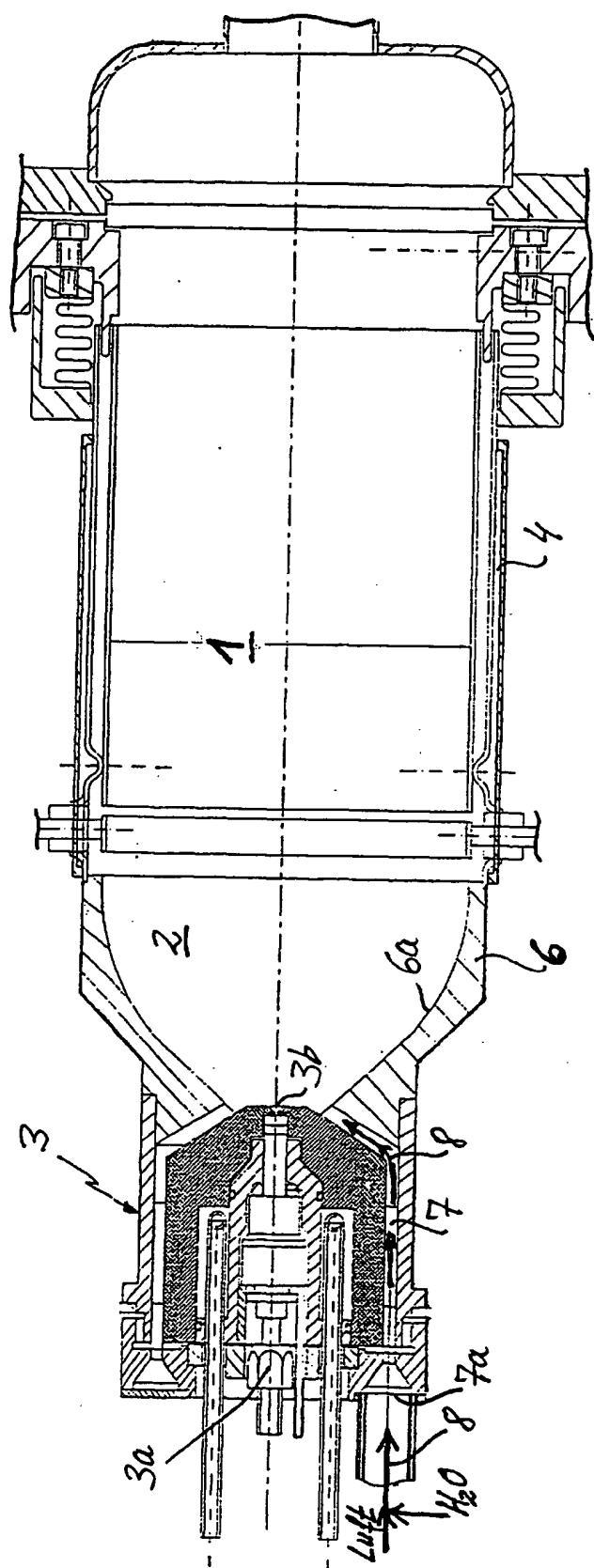
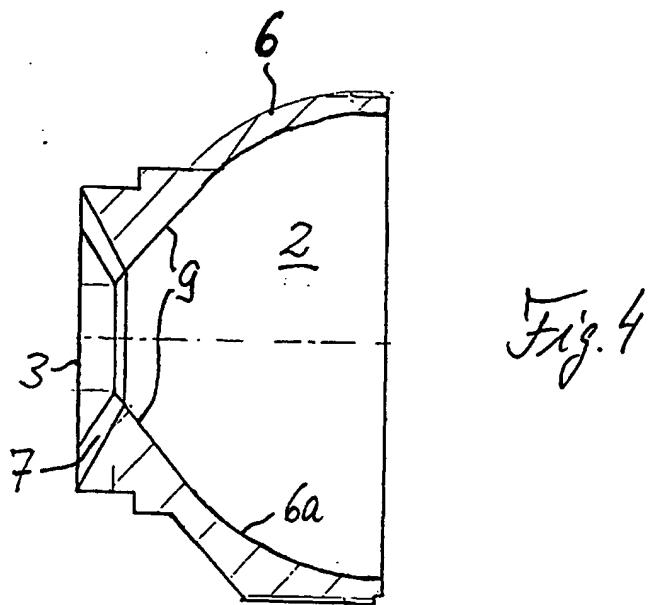
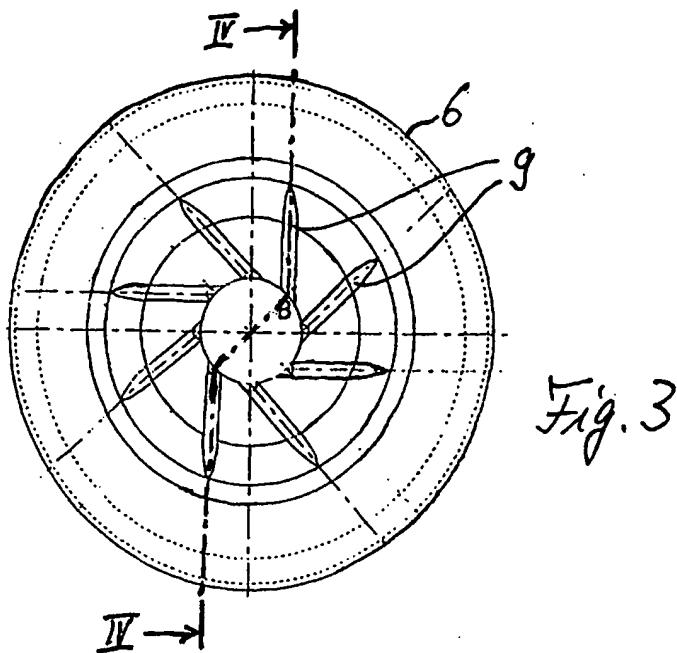


Fig. 1





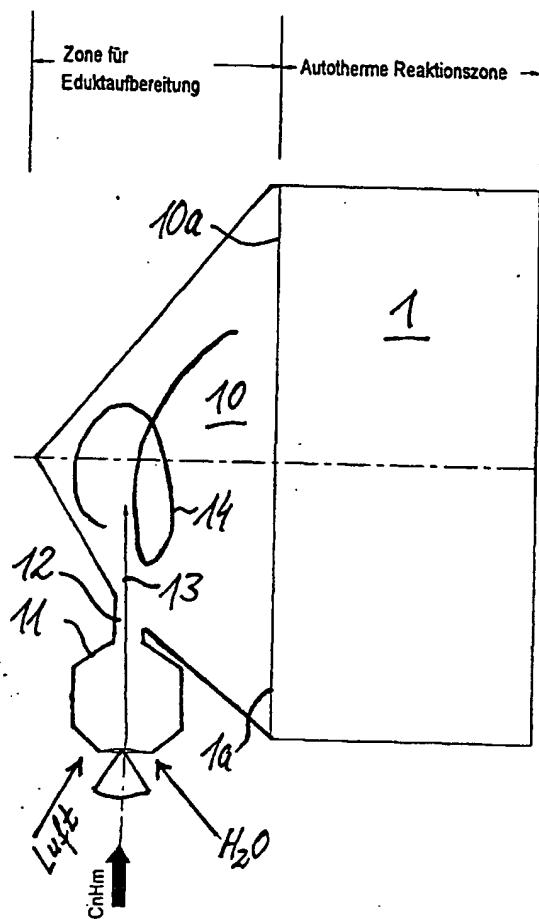


Fig. 5

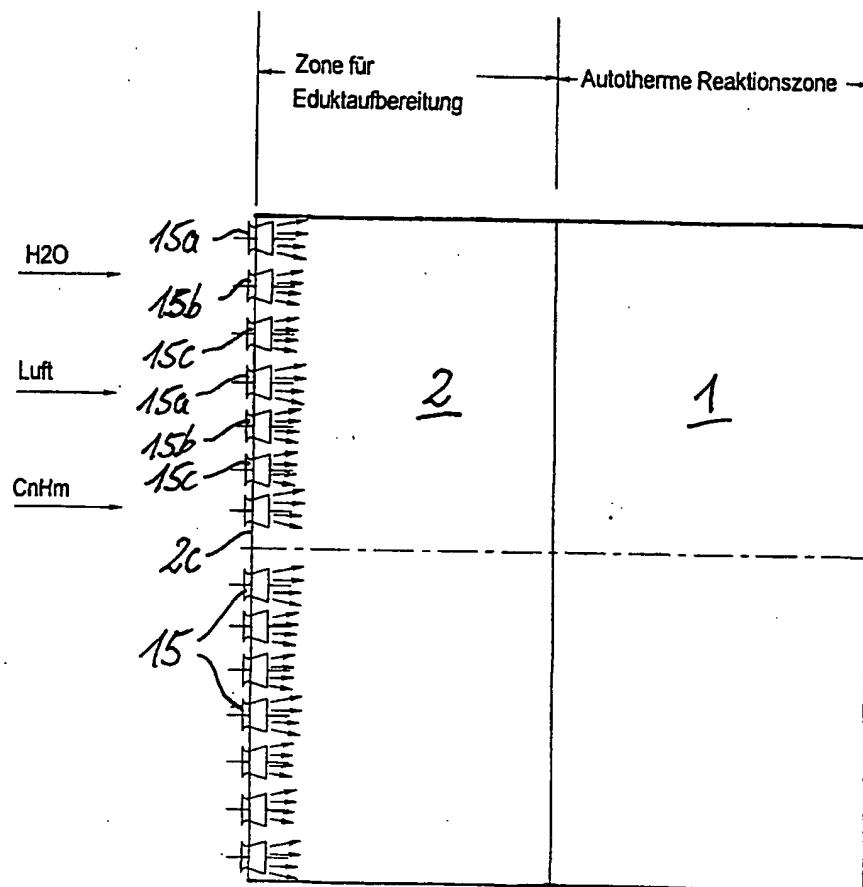


Fig. 6